(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum Internationales Büro





(43) Internationales Veröffentlichungsdatum 6. Dezember 2001 (06.12.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer WO 01/93354 A2

(51) Internationale Patentklassifikation⁷:

WO 01/9334 A2

H01M 8/00

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/EP01/06175

(22) Internationales Anmeldedatum:

31. Mai 2001 (31.05.2001)

(25) Einreichungssprache:

Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache:

Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:

100 27 069.7

31. Mai 2000 (31.05.2000) DE

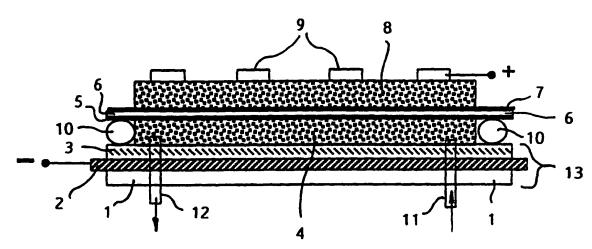
(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): MANHATTAN SCIENTIFICS, INC. [US/US];

Olympic Tower, Suite 36F, 641 Fifth Avenue, New York, NY 10022 (US).

- (72) Erfinder; und
- (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): KOSCHANY, Arthur [DE/DE]; Pfarrweg 5, 94121 Salzweg (DE).
- (74) Anwalt: RIEDERER VON PAAR, Anton; Postfach 26 64, 84010 Landshut (DE).
- (81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW,

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

- (54) Title: FUEL CELL SYSTEM AND METHOD FOR THE PRODUCTION THEREOF
- (54) Bezeichnung: BRENNSTOFFZELLENANORDNUNG UND VERFAHREN ZU IHRER HERSTELLUNG



- (57) Abstract: In prior art polymer-electrolyte membrane (PEM) fuel cells, mechanical compression devices are used which mostly serve to counteract the reactands supplied with overpressure. The heavy weight and large volume of these devices and the associated costs are decisive drawbacks for the practical use of fuel cells. According to the invention, the coatings are held together by chemical bonding agents without the provision of mechanical devices. The invention enables the avoidance of all the above-mentioned drawbacks due to the use of simple and economical laminating processes thereby eliminating the need for mechanical compression devices. The inventive laminating processes are particularly suited for the use of PEM fuel cells in the mobile domain and for a planar configuration of the individual cells, in which a plurality of individual or double cells are adjacently placed on a flat or curved surface.
- (57) Zusammenfassung: Bei bisher bekannten PEM Brennstoffzellen werden Vorrichtungen zur mechanischen Kompression verwendet, die meist dazu dienen, den mit Überdruck zugeführten Reaktanden entgegenzuwirken. Das hohe Gewicht und Volumen dieser Vorrichtungen und die damit verbundenen Kosten sind für die praktische Anwendung von Brennstoffzellen von entscheidendem Nachteil. Gemäss der Erfindung werden die Schichten ohne mechanische Vorrichtungen durch chemische Bindemittel zusammengehalten. Mit der Erfindung können somit mittels einfacher und kostengünstiger

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]



WO 01/93354 A2



MX, MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.

(84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Erklärungen gemäß Regel 4.17:

 hinsichtlich der Identität des Ersinders (Regel 4.17 Ziffer i) für alle Bestimmungsstaaten

- hinsichtlich der Berechtigung des Anmelders, ein Patent zu beantragen und zu erhalten (Regel 4.17 Ziffer ii) für alle Bestimmungsstaaten
- Erfindererklärung (Regel 4.17 Ziffer iv) nur für US

Veröffentlicht:

 ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

Laminierungsprozesse alle oben aufgeführten Nachteile durch Eliminierung der Vorrichtungen zur mechanischen Kompression vermieden werden. Die erfindungsgemässen Laminierungsprozesse eignen sich insbesondere bei dem Einsatz von PEM-Brennstoffzellen im mobilen Bereich sowie bei einer planaren Anordnungen der einzelnen Zellen, bei denen sich eine Mehrzahl von Einzeloder Doppelzellen nebeneinander auf einer ebenen oder gekrümmten Fläche befinden.

BNSDOCID: <WO_____0193354A2_I_>

Brennstoffzellenanordnung und Verfahren zu ihrer Herstellung

Die Erfindung bezieht sich auf eine Brennstoffzellenanordnung, enthaltend mindestens eine Polymerelektrolyt-Membran-(PEM)-Brennstoffzelle mit einer zwischen einer Kathoden- und einer Anodenkatalysatorschicht angeordneten Polymerelektrolytmembran, beiderseits hiervon angeordneten Gasdiffusionsschichten und an wenigstens einer der Gasdiffusionsschichten anliegend wenigstens einer Abschlußschicht, und auf ein Verfahren zu ihrer Herstellung, und betrifft speziell PEM-Brennstoffzellen hoher Leistungsdichte, die ohne äußere, mechanische Kompressionsvorrichtungen funktionsfähig sind und durch Laminierungsprozesse hergestellt sind.

Das zentrale Bauteil einer PEM-Brennstoffzelle ist eine Polymerelektrolyt-Membran (PEM). Sie hat die Aufgabe, die für Brennstoffzellen typischen Reaktanden, z. B. Wasserstoff oder Methanol als Brennstoff und Luft bzw. reinen Sauerstoff als Oxidationsmittel, zu trennen, H+ Ionen zu leiten und elektronisch

5

10

zu isolieren. Auf beiden Seiten der Membran sind Katalysatorschichten aufgebracht. Zur Verteilung der meist gasförmigen Reaktanden und zur Ableitung des im Betrieb entstehenden Stroms werden gut leitfähige poröse Schichtmaterialien und evtl. zusätzlich Kanalstrukturen verwendet. Die Reaktanden werden in diesen Strukturen separat auf beiden Seiten der Membran geführt. Zumindest die Brennstoffseite muß zum umgebenden Luftraum mittels einer gasdichten Abschlußschicht oder -platte (z. B. einer sog. Bipolarplatte) und einer Dichtung abgeschlossen werden.

Beim Betrieb der Zelle werden an der Katalysatorschicht der Brennstoffseite der Membran (Anode) Elektronen und H+ Ionen frei. Auf der gegenüberliegenden Katalysatorschicht, der Kathode, werden die über einen äußeren Stromkreis geführten Elektronen mit den durch die Membran wandernden H+ Ionen und dem Oxidationsmittel (z. B. Sauerstoff aus der Luft) zum Reaktionsprodukt (z. B. Wasser) vereinigt. Bei diesem Prozeß entsteht zwischen den beiden Katalysatorschichten eine Potentialdifferenz, die im äußeren Stromkreis genutzt werden kann.

Um geringe elektrische Übergangswiderstände zwischen den einzelnen Schichtmaterialien zu erhalten, werden im Stand der Technik Vorrichtungen zur mechanischen Kompression senkrecht zur Membranfläche von einzelnen Zellen oder Stapeln von Zellen verwendet (vgl. PCT/EP 00/03542 oder US 5,484,666). Die mechanische Kompression dient weiterhin dazu, der Druckkraft der meist mit Überdruck zugeführten Reaktanden (z. B. Wasserstoff) entgegenzuwirken. Die Vorrichtung zur Kompression besteht häufig aus zwei miteinander verschraubten massiven Platten, zwischen denen sich die Brennstoffzelle oder der Brennstoffzellenstapel befindet. Der von diesen Vorrichtungen auf die Zellen aufgebrachte Druck liegt typischerweise zwischen 5 • 10⁵ und 15 • 10⁵ Pa (5 und 15 bar).

25

5

10

15

20

WO 01/93354

WO 01/93354

3

PCT/EP01/06175

Das hohe Gewicht und Volumen dieser Platten und die damit verbundenen Kosten sind für die praktische Anwendung von Brennstoffzellen insbesondere im mobilen Bereich von entscheidendem Nachteil. Am extremsten sind die Auswirkungen dieser Platten auf die Leistungsdichte der Brennstoffzellen bei planaren Anordnungen, bei denen sich eine Mehrzahl von Einzel- oder Doppelzellen nebeneinander auf einer ebenen oder gekrümmten Fläche befinden. Im Gegensatz zu Stapelanordnungen ist hier die Fläche der Spannplatten ähnlich groß wie die gesamte aktive Fläche der Zellenanordnung.

Mit der vorliegenden Erfindung können alle oben aufgeführten Nachteile durch Eliminierung der Vorrichtungen zur mechanischen Kompression vermieden werden.

Durch die Erfindung sollen Brennstoffzellenanordnungen hoher Leistungsdichte ohne Verwendung von Vorrichtungen zur mechanischen Kompression geschaffen werden, wozu vorzugsweise einfache und kostengünstige Laminierungsprozesse zur Herstellung derartiger Brennstoffzellenanordnungen angewandt werden.

Dies wird, ausgehend von der eingangs genannten Brennstoffzellenanordnung, dadurch erreicht, daß die Membran, die Katalysatorschichten, die Gasdiffusionsschichten und die wenigstens eine Abschlußschicht der Brennstoffzelle mechanisch fest und elektrisch leitfähig bzw. elektrochemisch aktiv ganzflächig durch ionenleitende chemische Bindemittel, insbesondere Polymere und/oder Thermound/oder Duroplaste, miteinander verbunden sind, ohne daß die Anordnung bzw. die Zelle eine sie zusammenpressende mechanische Vorrichtung umfaßt, bzw. dadurch, daß bei der Herstellung der Zelle die Membran, die Katalysatorschichten, die Gasdiffusionsschichten und die Abschlußschicht(en) der Brennstoffzelle mechanisch fest und elektrisch leitfähig bzw. elektrochemisch aktiv durch ionenleitende Polymere und/oder Thermo- und/oder Duroplaste verbunden werden. Die größten Vorteile der Erfindung ergeben sich bei der Anwen-

5

15

20

25

dung auf planare Anordnungen von Einzel- und Doppelzellen.

Das Verbinden von Schichten, nämlich einer Polymerelektrolyt-Membran mit zwei Gasdiffusionselektroden, durch Aufwenden von Wärme und Druck ist an sich bekannt, z. B. aus der EP 0 935 304 A.

Bevorzugte Weiterbildungen der Erfindung finden sich in den jeweiligen Unteransprüchen.

Weitere Einzelheiten, Vorteile und Weiterbildungen der Erfindung ergeben sich aus der folgenden Beschreibung eines bevorzugten Ausführungsbeispiels unter Bezugnahme auf die Zeichnung. Es zeigen:

- Fig. 1 einen Querschnitt durch eine einzelne Brennstoffzelle;
- Fig. 2 eine Draufsicht auf eine planare Anordnung von drei Brennstoffzellen auf einem gemeinsamen Substrat;
 - Fig. 3 einen Querschnitt durch eine Doppel-Brennstoffzelle.

Eine Brennstoffzelle gemäß Fig. 1 besteht, in stapelförmigem Aufbau von unten nach oben, aus einem Substrat 1, einem auf diesem angeordneten Anoden-Stromableiter 2, an den sich weiterhin eine Kohlenstoff-Komposit-Schicht 3 und an diese wiederum eine Anoden-Gasdiffusionsschicht 4 anschließt. Diese Schicht 4 trägt an ihrer in der Zeichnung oberen Seite einen Katalysator 5, der unmittelbar an einer Membran 6 anliegt, deren gegenüberliegende Seite durch eine kathodenseitige Schicht eines Katalysators 7 bedeckt ist. An diese Schicht schließt sich auf der membranabgewandten Seite eine kathodische Gasdiffusionsschicht 8 an, auf welcher schmale Leiterbahnen 9, gegebenenfalls auch nur Drähte, als Stromableiter aufgebracht sind. Die Anoden-Gasdiffusionsschicht 4 bildet einen Gasraum, der mit Hilfe einer Dichtung 10 abgedichtet ist und über einen Wasserstoffeinlaß 11 mit brennbarem Gas versorgt wird, das bzw. dessen

30

20

25

10

15

20

25

30

Reaktionsprodukte über einen Auslaß 12 wieder abgeleitet werden. Das Substrat 1, der Anoden-Stromableiter 2 und die Kohlenstoff-Komposit-Schicht 3 bilden zusammen eine Abschlußschicht 13. Bei anderen Ausführungen besteht die Abschlußschicht auch eventuell nur aus den Schichten 2 und 3, oder auch überhaupt nur aus dem Stromableiter 2.

Zellen der in Fig. 1 gezeigten Art können beispielsweise planar nebeneinander gemeinsam auf dem Substrat 1 angeordnet sein, auf dem die Anoden-Stromableiter 2 mit trennenden Zwischenräumen 14 angeordnet sind. Die Anschlüsse der einzelnen Teile der Anoden-Stromableiter 2 sind bei 15 dargestellt; sie sind zwecks Serienschaltung der drei Zellen jeweils mit einem Sternpunkt der Kathoden-Stromableiter 9 verbunden. Die beiden Stromabnahme-Pole sind mit "+" und "-" gekennzeichnet.

Die einzelnen Zellen weisen keine durchgehenden Schraubbolzen oder dergleichen zum Verpressen auf, sondern sind durch passende Bindemittel miteinander verklebt. Durch zweckmäßige Wahl dieser Bindemittel ist die Druckfestigkeit der Anordnung trotz eines gewissen Überdrucks in der Anoden-Gasdiffusionsschicht 4 gewahrt.

Die Zellen können auch als Stapel zusammengestellt sein, beispielsweise als Doppelzelle gemäß Fig. 3, die am Substrat 1 gespiegelt ist. Auch solche Zellen sind ohne mechanische Verpreßmittel aufgebaut.

Um Brennstoffzellen hoher Leistungsdichte ohne Vorrichtungen zur mechanischen Kompression zu realisieren, müssen alle verwendeten Schichtmaterialien mechanisch stabil und mit geringem elektrischem Übergangswiderstand verbunden sein. Die Druckkräfte des anodenseitigen Brennstoffes (beispielhaft wird im folgenden von Wasserstoff ausgegangen) müssen mindestens von den folgenden Grenzflächen (Fig. 1) aufgenommen werden:

6

- Membran 6/Katalysatorschicht 5
- Katalysatorschicht 5/Gasdiffusionsschicht 4
- Gasdiffusionsschicht 4/Abschlußschicht 13

Wird mittels einer weiteren Abschlußschicht die Oxidationsmittelseite geschlossen (beispielhaft wird im Folgenden von Luft ausgegangen) und die Zelle evtl. mit Überdruck betrieben, so ist die analoge Schichtfolge mechanisch zu verbinden. Bei offener Kathode wie in Fig. 1 dargestellt handelt es sich um die Übergänge

10

15

20

5

- Membran 6/Katalysatorschicht 7
- Katalysatorschicht 7/Gasdiffusionsschicht 8
- Gasdiffusionsschicht 8/Stromableiter 9

Selbst unter delaminierender Druckbelastung durch den Wasserstoff muß ein geringer Übergangs- und Durchgangswiderstand durch die Schichtmaterialien gewährleistet sein. Die typischerweise verwendeten Wasserstoffüberdrücke liegen bei 10⁴ bis 2 • 10⁵ Pa (0,1 - 2 bar). Die beschriebene Folge von mechanisch verbundenen (laminierten) Schichten kann sinngemäß für alle üblichen Zellanordnungen wie bipolarer Stapel, monopolarer Stapel, Einzelzellen und quasi monopolare Doppelzellen verwendet werden. Für eine spezielle Anordnung nutzlose Schichten wie z. B. das Substrat 1 für die inneren Zellen eines bipolare Stapels können auch weggelassen werden.

Die Abschlußschicht hat bei verschiedenen Zellanordnungen teilweise verschiedene Funktionen. Die Anforderungen an Gasdichtigkeit und Leitfähigkeit parallel zur Schichtebene sind unterschiedlich. Alle Anforderungen können von der erfindungsgemäßen Abschlußschicht insbesondere nach Beispiel 1 erfüllt werden.

7

In den Abbildungen und der folgenden Beschreibung wird auf Kanalstrukturen zur Gasführung in der Gasdiffusions- und/oder Abschlußschicht mit Ausnahme von Beispiel 1 nicht explizit eingegangen.

Die Abschlußschicht 13 umfaßt ein Material mit einer elektrischen Leitfähigkeit parallel und senkrecht zur Zellebene, die ausreichend ist, den im Betrieb produzierten elektrischen Strom ohne wesentlichen Spannungsabfall zum Kontaktpunkt 15 zu transportieren. Um die Verwendung teuerer Edelmetalle, die als einzige Metalle auf der leicht sauren Anodenseite chemisch stabil sind, zu vermeiden, wird bevorzugt eine durchgehende oder geschlitzte Nichtedelmetall-Folie (z. B. Kupfer) verwendet, die mit einer leitfähigen dichten Schutzschicht versehen ist. Bevorzugt wird dabei das in Beispiel 1 beschriebene Laminierverfahren angewendet, das auf einem leitfähigen vorgeformten Schichtmaterial, wie es aus der WO 00/10174 bekannt ist, beruht. Für Anwendungen, bei denen eine hohe mechanische Stabilität gegen Knicken der Zellfläche gefordert ist, kann eine Metallfolie auf einem möglichst steifen Substrat mit geringer Dichte fixiert werden. Besonders gute Eigenschaften weisen glas- oder kohlefaserverstärkte Epoxidharzplatten auf. Am einfachsten ist die Verwendung einer durchgehend oder teilweise mit Kupfer beschichteten Elektronikplatine, die aufgrund von Massenproduktion sehr kostengünstig verfügbar ist.

Die Membran 6, die Katalysatorschichten 5, 7 und die Gasdiffusionsschichten 4, 8 können durch Heißpressen unter Verwendung eines Hilfspolymers bevorzugt in einem einzigen Arbeitsgang zur sogenannten Membran-Elektroden-Einheit (membrane-electrode-assembly: MEA) verbunden werden. Die dabei auftretenden Temperaturen von bis zu 180° C (bevorzugt bis zu 140° C) und Drücke bis zu 5 • 10⁷ Pa (500 bar, bevorzugt bis zu 250 bar) stellen hohe Anforderungen an die verwendeten Materialien. Bezüglich der Druckstabilität sind ungefüllte handelsübliche Kohlefaserpapiere (Fa. Toray, Japan) als Gasdiffusionsschicht meist nicht geeignet. Geeignete sehr druckstabile Gasdiffusions-

5

10

15

20

25

8

schichten sind aus dem US-Patent US 5,998,057 bekannt. Verbesserungen dieses Materials bezüglich Zugbeanspruchungen senkrecht zur Schichtebene mittels Einbringen von Kunstharzen sind in Beispiel 3 und 4 der WO 00/10174 dargelegt. Diese verbesserten Materialien lassen sich nicht nur als Verstärkung von Gasdiffusionsschichten, wie in dieser Druckschrift offenbart, sondern auch als vollständige Gasdiffusionsschichten einsetzen.

Als Hilfspolymere finden Nafion™ (Dupont), PTFE, THV™ (Dyneon) und nicht fluorierte Thermoplaste wie z. B. PE, PP und PS Verwendung. Eine geeignete Anwendung mehrerer dieser Polymere vergrößert die Haftkraft im Vergleich zum Stand der Technik und liefert einen nennenswerten Beitrag zur vorliegenden Erfindung. Die Polymere können vor dem Heißpressen der Gasdiffusionsund der Katalysatorschicht in Form von Pulver, Vliesen, Folien, Suspensionen oder Lösungen beigegeben sein. Durch die Anwendung der erhöhten Temperatur und des Drucks schmelzen oder erweichen diese Polymere und verbinden die Schichtmaterialien innig. Detaillierte Verfahren sind in den nachfolgenden Beispielen 2 und 3 beschrieben.

Die leitfähige mechanische Verbindung der Abschlußschicht und der MEA erfolgt z.B. durch Auftrag eines aushärtbaren Harzes wie Epoxid-, Furan- oder Phenolharz auf die Oberfläche der Anode und/oder auf die der Anode zugewandte Oberfläche der Abschlußschicht. Das Aushärten erfolgt bevorzugt unter Druck bei erhöhter Temperatur.

Um zu vermeiden, daß das Harz einen zu großen Anteil der Poren der Elektrode blockiert, kann auf die Elektrode oder die entsprechende Oberfläche der Abschlußschicht zuvor eine mikroporöse, leitfähige Schicht z. B. aus Ruß aufgebracht werden, die das während des Aushärtevorgangs flüssige Harz aufnimmt. Aufgrund der größeren Kapillarkräfte in der feinporigen Schicht dringt das Harz nur wenig in die Elektrode ein.

5

10

15

WO 01/93354

5

10

15

20

25

30

Alternativ führt auch das Heißverpressen der Abschlußschicht und der MEA mit einem dazwischen positionierten thermoplastischen Material in Form einer Folie oder eines Vlieses zu einer festen, leitfähigen Verbindung.

Bevorzugt wird mit diesem Verfahrensschritt auch die Abdichtung des freien Membranrandes mit der Abschlußplatte durchgeführt. Bevorzugt wird eine Klebedichtung mit kalt- oder heißhärtenden Silikonen nach der WO 00/02279 angebracht. Besonders bevorzugt kann eine Klebedichtung ohne freien Membranrand auch nach DE 19703214 C verwendet werden. Beispiel 4 enthält eine detaillierte Beschreibung eines der Verfahren.

Der in Fig.1 dargestellte Kathodenstromableiter bedeckt die Kathode nur teilweise, damit der Sauerstoff der Luft bis zum Katalysator diffundieren kann. Er besteht bevorzugt aus einer Metallfolie (z. B. Kupfer), die entweder mit einem Edelmetall oder nach dem Verfahren in Beispiel 1 (Abschlußschicht) ein- oder beidseitig beschichtet ist. Die Laminierung des Stromableiters auf die Kathode bzw. die MEA erfolgt analog dem Verfahren zur Verbindung der Anode mit der Abschlußschicht.

Alternativ kann der Kathodenstromableiter auch als Gitter oder geschlitzte Metallfolie zwischen zwei kathodischen Gasdiffusionslagen während des oben erwähnten Verstärkungsverfahrens eingelegt und dann mittels Druck- und Temperaturerhöhung einlaminiert werden.

Beispiel 1:

Im Sinne von Beispiel 1 aus WO 00/10174 wird ein Kohlefaservlies (3 mg/cm²) mit einer Dispersion aus expandierten, gemahlenem Graphit, Leitruß und PTFE ein- oder mehrmals durch Einwalzen imprägniert und nach jedem Imprägnierungsschritt getrocknet. Der Massenanteil an Graphit bezogen auf die einge-

10

15

20

25

30

brachten Kohlenstoffmaterialien beträgt 10 bis 100 %, bevorzugt 40 bis 75 %. Der Anteil von PTFE and den gesamten eingebrachten Feststoffen beträgt etwa 3 bis 10 %. Nach Trocknen und Sintern beträgt die flächenbezogene Gesamtmasse des imprägnierten Vlieses 6 bis 25 mg/cm², bevorzugt 8 bis 14 mg/cm². Dieses noch poröse Schichtmaterial wird mit einer Lösung aus Kunstharz, z. B. Epoxidharz, in Aceton getränkt und die Lösungsmittel werden abgedampft. Der Kunstharzanteil in der Lösung liegt bei 10 bis 90 %, und bevorzugt bei 40 bis 60 %. Ein oder mehrere dieser Kunstharz enthaltenden Vliese werden auf eine Kupferfolie oder eine Elektronikplatine mit frei liegenden Leiterbahnen oder einer freien aber geschlossenen Kupferfläche gelegt und bei evtl. erhöhter Temperatur verpreßt, bis das Kunstharz vollständig oder teilweise ausgehärtet ist. Die entstehende Schicht haftet gut auf der Metallschicht, ist dicht und weist einen geringen Durchgangswiderstand und einen geringen Übergangswiderstand zu anderen Kohlenstoffmaterialien auf. Beide Widerstände zusammen betragen typischerweise weniger als 40 mOhm • cm².

Die Leiterbahnen auf der Elektronikplatine können bezüglich Dicke und geometrischer Struktur so gestaltet werden, daß sich Kanäle zur Führung der Reaktionsgase, nämlich insbesondere Wasserstoff, ausbilden. Nach Beschichtung bleibt diese Kanalstruktur im wesentlichen erhalten.

Beispiel 2:

Die nachstehende Schichtfolge wird bei 190° C für 15 Sekunden mit einem Druck von 10⁷ Pa (100 bar) verpreßt:

- Gasdiffusionsschicht
- Polypropylenfolie 3,5 μ m dick
- Membran beidseitig beschichtet mit Katalysator enthaltend Nafion™ oder ein verwandtes Ionomer

- Polypropylenfolie 3,5 μ m dick
- Gasdiffusionsschicht

Es entsteht eine mechanisch fest verbundene und elektrochemisch aktive MEA. Die obigen numerischen Daten sind nur Beispiele und können großen Variationen unterworfen werden. Weiterhin können statt Polypropylen auch andere Thermoplaste wie etwa Polyethylen eingesetzt werden. Die Verarbeitungstemperatur kann in diesem Fall deutlich gesenkt werden.

Eine feste Verbindung entsteht auch, wenn die Gasdiffusionsschicht, eine zusätzliche Lage auf dieser Gasdiffusionsschicht oder die Katalysatorschicht pulverförmige Thermoplasten enthalten.

Beispiel 3:

15

20

25

30

5

Verwendet werden zwei einseitig nach der US 5,998,057 mit Katalysator beschichtete Gasdiffusionsschichten und eine beidseitig mit Katalysator beschichtete Polymerelektrolytmembran, z. B. PRIMEA™ MEA von Gore. Alle Katalysatorschichten werden ein oder mehrmals mit einer 0,5 - 5%igen Nafion™ Lösung besprüht und anschließend getrocknet. Um durch die Lösungsmittel verursachte Wellungen der Membran zu vermeiden, wird sie während des Besprühens und Trocknens auf einen feinporigen, nichtmetallischen Vakuumtisch gespannt. Die beiden Gasdiffusionsschichten werden mit den katalysierten Seiten der Membran zugewandt, beiderseits der Membran positioniert und bei ca. 140° C mit bis zu 3 • 10⁷ Pa (300 bar) Druck für etwa 2 Minuten verpreßt. Es entsteht ein mechanisch fester Verbund.

Beispiel 4:

Die der Anode zugewandte Seite der Abschlußschicht 13 wird mit einer Disper-

10

15

20

25

30

sion aus Leitruß, expandiertem Graphit und PTFE in den bezüglich der Massen 1:1 gemischten Dispersionsflüssigkeiten Isopropanol und Wasser ein- oder mehrmals mit Zwischentrocknen besprüht. Bezüglich der gesamten Feststoffe beträgt der Anteil an PTFE typischerweise 3 bis 10 %. Das Massenverhältnis von Graphit und Leitruß kann in weiten Grenzen variiert werden. Die Trockenmasse der Sprühschicht beträgt etwa 0,5 bis 3 mg/cm². PTFE dient hier nur als Hilfsbinder für die Schicht während der Verarbeitung.

Ein wie in Beispiel 1 verwendetes verdünntes Kunstharz (z. B. Epoxidharz) wird in geeigneter Menge auf die zuvor beschriebene Schicht aufgesprüht. Anschließend werden die Lösungsmittel abgedampft. Während beider Sprühvorgänge sollte der Dichtungsbereich der späteren Zelle ausgespart bleiben.

Als Randabdichtung für die Zelle wird eine Kleberaupe aus heißhärtendem Silikon am Umfang der Anode auf die Abschlußschicht aufgetragen. Die MEA wird genau positioniert, auf die Abschlußschicht aufgesetzt und mit dieser heiß verpreßt, bis die Kunststoffe ganz oder teilweise ausgehärtet sind. Typische Drücke liegen im Bereich von 10⁶ bis 3 • 10⁷ Pa (10 bis 300 bar), die Temperatur richtet sich nach den Erfordernissen zur Aushärtung von Epoxidharz und Silikon.

Als Endprodukt dieses Verfahrensschrittes liegt ein anodenseitig gasdichter mechanisch fester Verbund aus MEA und Abschlußschicht vor. Der Kathodenstromableiter kann nachträglich laminiert werden.

Beispiel 5:

Eine planare Doppelzelle gemäß Fig. 3 von grundsätzlich an sich bekannter Bauart (z. B. WO 95/17772) mit verbundenen Anodenräumen und zwei gegenüberliegenden Kathoden wird bevorzugt mit Hilfe einer doppelseitig mit Metall

beschichteten Elektronikplatine aufgebaut. Die durchgehenden oder unterbrochenen Metallschichten der Platine werden wie in Beispiel 1 beschrieben mit einem Komposit aus Polymeren mit verschiedenen Kohlenstoffmaterialien beschichtet. Es entsteht somit eine doppelte Abschlußschicht. Auf beiden Seiten dieser Schicht werden Membran-Elektroden-Einheiten mit Stromableitern nach einem der oben genannten Verfahren angebracht und abgedichtet. Eine Wasserstoffzu- und eventuell -abflußbohrung verbindet und versorgt die beiden Anodenräume. Ober- und Unterseite dieser planaren Anordnung bestehen aus Kathoden. Da die Metallschichten der beiden Anoden elektrisch isoliert sind, können die beiden Zellen in Reihe geschaltet werden und liefern so eine für viele Anwendungen erforderliche höhere Spannung.

BNSDOCID: <WO____0193354A2_i_>

5

10

20

25

30

Patentansprüche:

- 1. Brennstoffzellenanordnung, enthaltend mindestens eine PolymerelektrolytMembran-(PEM)-Brennstoffzelle mit einer zwischen einer Kathoden- und
 einer Anodenkatalysatorschicht (5, 7) angeordneten Polymerelektrolytmembran (6), beiderseits hiervon angeordneten Gasdiffusionsschichten (4, 8)
 und an wenigstens einer der Gasdiffusionsschichten anliegend wenigstens
 einer Abschlußschicht (13), dadurch gekennzeichnet, daß die Membran (6),
 die Katalysatorschichten (5, 7), die Gasdiffusionsschichten (4, 8) und die
 wenigstens eine Abschlußschicht (13) der Brennstoffzelle mechanisch fest
 und elektrisch leitfähig bzw. elektrochemisch aktiv ganzflächig durch
 chemische Bindemittel miteinander verbunden sind.
- 2. Brennstoffzellenanordnung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Bindemittel Polymere und/oder Thermo- und/oder Duroplaste sind.
 - 3. Brennstoffzellenanordnung nach Anspruch 1 oder 2, mit einer Mehrzahl von als Stapel angeordneten Brennstoffzellen, dadurch gekennzeichnet, daß die Zellen des Stapels durch ionenleitende Polymere und/oder Thermound/oder Duroplaste miteinander verbunden sind.
 - 4. Brennstoffzellenanordnung nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Brennstoffzelle eine Abschlußschicht (13) aufweist, die eine durchgehende oder unterbrochene Metallschicht (2) enthält, die zumindest anodenseitig mit einer Schicht (3) aus Kohlenstoffmaterialien und Thermo- und/oder Duroplasten versehen ist.
 - 5. Brennstoffzellenanordnung nach dem auf Anspruch 1 oder 2 rückbezogenen Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß mehrere Zellen planar auf einer

10

15

20

gemeinsamen Abschlußschicht (13) angeordnet sind.

- 6. Brennstoffzellenanordnung nach einem der Ansprüche 4 oder 5, dadurch gekennzeichnet, daß die Abschlußschicht (13) ein gegen mechanische Verwindung stabiles Substrat (1) besitzt.
- 7. Brennstoffzellenanordnung nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß das Substrat (1) der Brennstoffzelle aus einer Elektronikplatine mit aufgedruckten Leiterbahnen oder mit einer durchgehenden Metallschicht (2) besteht.
- 8. Brennstoffzellenanordnung nach einem der Ansprüche 3 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß die Abschlußschicht (13) einerseits und die Baueinheit aus der Membran (6), den Katalysatorschichten (5, 7) und den Gasdiffusionsschichten (4, 8) andererseits mit Thermo- und/oder Duroplasten leitfähig und mechanisch fest miteinander verbunden sind.
- 9. Brennstoffzellenanordnung nach Anspruch 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß die Brennstoffzelle einen kathodischen Stromableiter (9) aufweist, der mit der Baueinheit aus der Membran (6), den Katalysatorschichten (5, 7) und den Gasdiffusionsschichten (4, 8) mit Thermo- und/oder Duroplasten leitfähig und mechanisch fest verbunden ist.
- 10. Verfahren zur Herstellung einer Brennstoffzellenanordnung nach einem der
 Ansprüche 1 bis 9, die mindestens eine Polymerelektrolyt-MembranBrennstoffzelle mit einer zwischen einer Kathoden- und einer Anodenkatalysatorschicht (5, 7) eingeschlossenen Polymerelektrolytmembran (6) und
 beiderseits hiervon angeordneten Gasdiffusionsschichten (4, 8) umfaßt,
 dadurch gekennzeichnet, daß die Membran (6), die Katalysatorschichten
 (5, 7), die Gasdiffusionsschichten (4, 8) und die Abschlußschicht(en) (13)

der Brennstoffzelle mechanisch fest und elektrisch leitfähig bzw. elektrochemisch aktiv durch ionenleitende Polymere und/oder Thermo- und/oder Duroplaste verbunden werden.

- 11. Verfahren zur Herstellung einer Brennstoffzellenanordnung nach Anspruch 10, dadurch gekennzeichnet, daß man die Brennstoffzelle mit einer Abschlußschicht (13) versieht, die eine durchgehende oder unterbrochene Metallschicht (2) enthält, die man zumindest anodenseitig mit einer Schicht (3) aus Kohlenstoffmaterialien und Thermo- und/oder Duroplasten versieht.
 - 12. Verfahren zur Herstellung einer Brennstoffzellenanordnung nach Anspruch 10 oder 11, dadurch gekennzeichnet, daß man die Brennstoffzelle mit einer Abschlußschicht (13) versieht, die ein gegen mechanische Verwindung stabiles Substrat besitzt.
 - 13. Verfahren zur Herstellung einer Brennstoffzellenanordnung nach Anspruch 12, dadurch gekennzeichnet, daß man als Substrat (1) eine Elektronikplatine mit aufgedruckten Leiterbahnen oder mit einer durchgehenden Metallschicht (2) verwendet.
 - 14. Verfahren zur Herstellung einer Brennstoffzellenanordnung nach einem der Ansprüche 10 bis 13, dadurch gekennzeichnet, daß man die Membran (6), die Katalysatorschichten (5, 7) und die Gasdiffusionsschichten (4, 8) der Zelle mit den ionenleitenden Polymeren und/oder den Thermo- und/oder Duroplasten durch Heißpressen verbindet.
 - 15. Verfahren zur Herstellung einer Brennstoffzellenanordnung nach einem der Ansprüche 10 bis 14, dadurch gekennzeichnet, daß man die Brennstoffzelle mit einer Abschlußschicht (13) versieht, die man mit der Baueinheit aus

15

20

25

der Membran (6), den Katalysatorschichten (5, 7) und den Gasdiffusionsschichten (4, 8) durch Thermo- und/oder Duroplaste bevorzugt durch Heißpressen leitfähig und mechanisch fest verbindet.

5 16. Verfahren zur Herstellung einer Brennstoffzellenanordnung nach einem der Ansprüche 10 bis 15, dadurch gekennzeichnet, daß man die Baueinheit aus der Membran (6), den Katalysatorschichten (5, 7) und den Gasdiffusionsschichten (4, 8) mit einem kathodischen Stromableiter (9) durch Thermound/oder Duroplaste bevorzugt durch Heißpressen leitfähig und mechanisch fest verbindet.

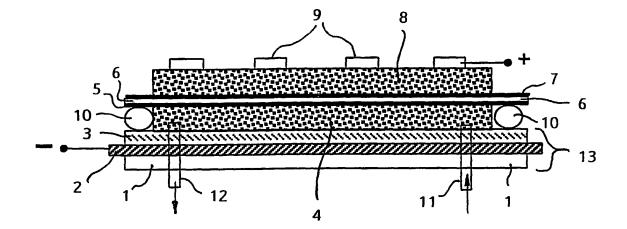


Fig. 1

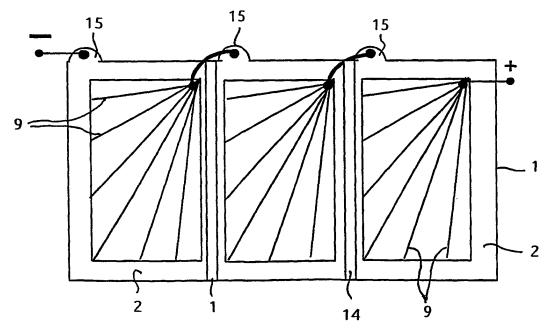


Fig. 2

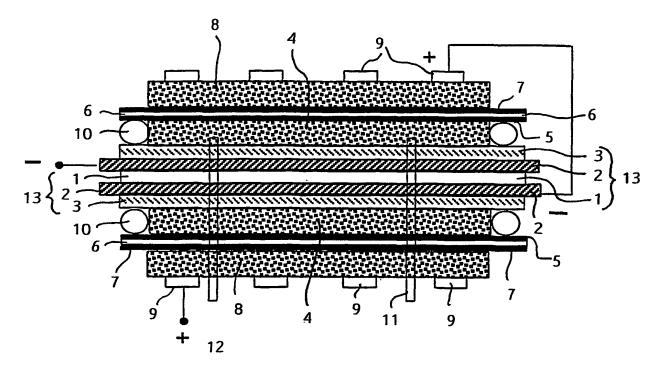


Fig. 3

THIS PAGE BLANK (USPTO)

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum Internationales Büro





(43) Internationales Veröffentlichungsdatum 6. Dezember 2001 (06.12.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer WO 01/093354 A3

(51) Internationale Patentklassifikation⁷: 8/24, 8/02

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): MANHATTAN SCIENTIFICS, INC. [US/US]; Olympic Tower, Suite 36F, 641 Fifth Avenue, New York,

NY 10022 (US).

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/EP01/06175

H01M 8/10,

(22) Internationales Anmeldedatum:

31. Mai 2001 (31.05.2001)

(25) Einreichungssprache:

Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache:

Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:

100 27 069.7

31. Mai 2000 (31.05.2000) DE

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): KOSCHANY, Arthur [DE/DE]; Pfarrweg 5, 94121 Salzweg (DE).

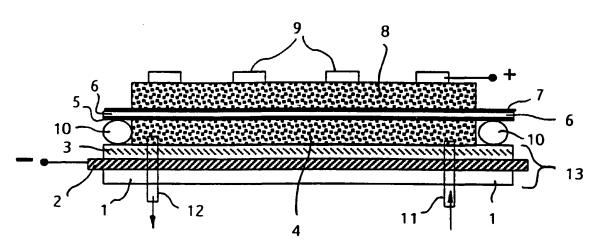
(74) Anwalt: RIEDERER VON PAAR, Anton; Postfach 26 64, 84010 Landshut (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH,

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

 $\textbf{(54) Title:} \ POLYMER-ELECTROLYTE \ MEMBRANE \ (PEM) \ FUEL \ CELL \ SYSTEM \ AND \ METHOD \ FOR \ THE \ PRODUCTION \ THEREOF$

(54) Bezeichnung: PEM-BRENNSTOFFZELLENANORDNUNG UND VERFAHREN ZU IHRER HERSTELLUNG



(57) Abstract: The invention relates to a fuel cell system containing at least one polymer-electrolyte membrane (PEM) fuel cell with a polymer-electrolyte membrane (6) placed between a cathode catalyst layer (5) and an anode catalyst layer (7). The fuel cell also comprises gas diffusion layers (4, 8), which are located on both sides of the polymer-electrolyte membrane, and comprises at least one terminating layer (13), which rests against at least one of the gas diffusion layers. The fuel cell system is characterized in that the membrane (6), the catalyst layers (5, 7), the gas diffusion layers (4, 8) and the at least one terminating layer (13) of the fuel cell are, over their entire surfaces, joined to one another in a mechanically fixed, electrically conductive or electrochemically active manner by means of chemical bonding agents. The laminating processes are particularly suited for the use of PEM fuel cells in the mobile domain and for a planar configuration of the individual cells, in which a number of individual or double cells are adjacently located on a flat or curved surface.

(57) Zusammenfassung: Brennstoffzellenanordnung, enthaltend mindestens eine Polymerelektrolyt-Membran-(PEM)-Brennstoffzelle mit einer zwischen Kathoden- und einer Anodenkatalysatorschicht (5, 7) angeordneten Polymerelektrolytmembran (6), beiderseits hiervon angeordneten Gasdiffusionsschichten (4, 8) und an wenigstens einer der Gasdiffusionsschichten anliegend

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]



70 01/093354 A3



GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.

(84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Erklärungen gemäß Regel 4.17:

 hinsichtlich der Identität des Erfinders (Regel 4.17 Ziffer i) für alle Bestimmungsstaaten

- hinsichtlich der Berechtigung des Anmelders, ein Patent zu beantragen und zu erhalten (Regel 4.17 Ziffer ii) für alle Bestimmungsstaaten
- Ersindererklärung (Regel 4.17 Zisser iv) nur für US

Veröffentlicht:

- mit internationalem Recherchenbericht
- (88) Veröffentlichungsdatum des internationalen
 Recherchenberichts: 28. November 2002

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

wenigstens einer Abschlußschicht (13), dadurch gekennzeichnet, daß die Membran (6) die Katalysatorschichten (5, 7), die Gasdiffusionsschichten (4, 8) und die wenigstens eine Abschlußschicht (13) der Brennstoffzelle mechanisch fest und elektrisch leitfähig bzw. elektrochemisch aktiv ganzflächig durch chemische Bindemittel miteinander verbunden sind. Die Laminierungsprozesse eignen sich insbesondere bei dem Einsatz von PEM-Brennstoffzellen im mobilen Bereich sowie bei einer planaren Anordnungen der einzelnen Zellen, bei denen sich eine Mehrzahl von Einzel-oder Doppelzellen nebeneinander auf einer ebenen oder gekrümmten Fläche befinden.

BNSDOCID: <WO____0193354A3_I_>

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

PCT/EP 01/06175

			,			
A. CLASSI IPC 7	FIGATION OF SUBJECT MATTER H01M8/10 H01M8/24 H01M8/0	2				
According to	According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC					
	SEARCHED					
Minimum do IPC 7	ocumentation searched (classification system followed by classifical ${\sf H01M}$	tion symbols)				
	tion searched other than minimum documentation to the extent that					
	lata base consulted during the international search (name of data b	ase and, where practical, search terms used)			
C. DOCUM	ENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT					
Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the re	elevant passages	Relevant to claim No.			
X	US 5 945 232 A (ERNST WILLIAM D 31 August 1999 (1999-08-31) column 9, line 26 - line 39; fig column 7, line 44 - line 47 column 5, line 14 - line 17	•	1			
Υ .			2,3, 8-10, 14-16			
Y	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1996, no. 11, 29 November 1996 (1996-11-29) -& JP 08 185875 A (TOKYO GAS CO 16 July 1996 (1996-07-16) abstract	LTD),	2,3, 8-10, 14-16			
'		-/				
		,				
X Furth	her documents are listed in the continuation of box C.	X Patent family members are listed	in annex.			
° Special ca	tegories of cited documents:	*T* later document published after the Inte	rnational filing date			
consid	ent defining the general state of the art which is not lered to be of particular relevance document but published on or after the international	or priority date and not in conflict with cited to understand the principle or the invention "X" document of particular relevance; the c	the application but eory underlying the			
filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or						
other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "B" document member of the same patent family "&" document member of the same patent family						
Date of the actual completion of the International search Date of mailing of the international search report						
21 August 2002 28/08/2002						
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Authorized officer						
	Tel. (+31–70) 340–2040, Tx. 31 651 epo nl, Faxc (+31–70) 340–3016	D'hondt, J				

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1992)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Int onal Application No PCT/EP 01/06175

•		PC1/EP 01/06175
C.(Continua	ation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT	Relevant to claim No.
Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Pelevani to claim No.
Y	GB 2 323 700 A (BALLARD POWER SYSTEMS) 30 September 1998 (1998-09-30) page 9, last paragraph -page 10, paragraph 2; figures 3,5 page 8, paragraph 2	2,3,8-10
Υ	DE 198 23 880 A (MOTOROLA INC) 10 December 1998 (1998-12-10) column 5, line 5 - line 24; claims 1-4	2,3,8-10
Y	WO 00 02279 A (KOSCHANY PETRA ;MANHATTAN SCIENT INC (US)) 13 January 2000 (2000-01-13) cited in the application page 5, line 3 - line 5; claims 1,6; figure 5	2,3,8-10
Α	AT 393 045 B (SCHUETZ PETER DIPL ING DR) 25 July 1991 (1991-07-25) page 5, line 28 - line 37; claim 1; figure 4	7
A	EP 0 499 935 A (ABB PATENT GMBH) 26 August 1992 (1992-08-26)	

Form PCT/ISA/210 (continuation of second sheet) (July 1992)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT Information on patent family members

PCT/EP 01/06175

Patent document clted in search report	Publication date	Patent family Publication member(s) date	
US 5945232 A	31-08-1999	AU 3186299 A 25-10-1999 EP 1070361 A1 24-01-2001 JP 2002510851 T 09-04-2002 WO 9952164 A1 14-10-1999	
JP 08185875 A	16-07-1996	NONE	
GB 2323700 A	30-09-1998	DE 19713250 A1 15-10-1998 US 6080503 A 27-06-2000 CA 2233440 A1 29-09-1998 GB 2348047 A ,B 20-09-2000	
DE 19823880 A	10-12-1998	DE 19823880 A1 10-12-1998 FR 2764122 A1 04-12-1998 GB 2326017 A 09-12-1998 SE 9801942 A 04-12-1998	
WO 0002279 A	13-01-2000	DE 19829142 A1 05-01-2000 AU 5616499 A 24-01-2000 BR 9911759 A 03-04-2001 CN 1307734 T 08-08-2001 WO 0002279 A2 13-01-2000 DE 19981229 D2 13-06-2001 EP 1095415 A2 02-05-2001 JP 2002520777 T 09-07-2002 NO 20006707 A 29-12-2000 TR 200003802 T2 21-06-2001	
AT 393045 B	25-07-1991	AT 190489 A 15-12-1990	
EP 0499935 A	26-08-1992	DE 4104841 A1 20-08-1992 EP 0499935 A1 26-08-1992	

Form PCT/ISA/210 (patent family armex) (July 1992)

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

In ales Aktenzeichen PCT/EP 01/06175

A. KLASSIF IPK 7	FIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES H01M8/10 H01M8/24 H01M8/02		
Nach der Inte	ernationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassi	fikation und der iPK	
	CHIERTE GEBIETE		
IPK 7	ler Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole ${ m H01M}$		
	te aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, sow		
Während de	r internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Nat	me der Datenbank und evtl. verwendete S	Suchbegriffe)
EPO-In	ternal, PAJ		
C. ALS WE	SENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe	der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
х	US 5 945 232 A (ERNST WILLIAM D E 31. August 1999 (1999-08-31) Spalte 9, Zeile 26 - Zeile 39; Abb Spalte 7, Zeile 44 - Zeile 47 Spalte 5, Zeile 14 - Zeile 17		1
Y	Spaite 5, Zeile 14 - Zeile 17		2,3,
'			8-10, 14-16
Υ	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1996, no. 11, 29. November 1996 (1996-11-29) -& JP 08 185875 A (TOKYO GAS CO L' 16. Juli 1996 (1996-07-16) Zusammenfassung	ГD),	2,3, 8-10, 14-16
		/	
	itere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu nehmen	Siehe Anhang Patentfamilie	
 Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen: "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist "E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist "L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt) "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist "Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlichung des der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Versändnts des der Anmeldung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist "Y Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindur kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindur kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindur kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindur kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindur kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet verden veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindur kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet verden, wenn die Veröffentlichung dieser Veröffentlichung die beanspruchte Erfindur			
	s Abschlusses der Internationalen Recherche 21. August 2002	Absendedatum des internationalen R	scherchennenchis
	Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde	Bevollmächtigter Bediensteter	
	Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentiaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fay: (431-70) 340-3016	D'hondt, J	

Formblatt PCT/ISA/210 (Blatt 2) (Juli 1992)

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Ir males Aktonzeichen
PCT/EP 01/06175

		FC1/EF 01/001/5
	ung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN	
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht komm	nenden Teile Betr. Anspruch Nr.
Υ	GB 2 323 700 A (BALLARD POWER SYSTEMS) 30. September 1998 (1998-09-30) Seite 9, letzter Absatz -Seite 10, Absatz 2; Abbildungen 3,5 Seite 8, Absatz 2	2,3,8-10
Y	DE 198 23 880 A (MOTOROLA INC) 10. Dezember 1998 (1998-12-10) Spalte 5, Zeile 5 - Zeile 24; Ansprüche 1-4	2,3,8-10
Υ	WO 00 02279 A (KOSCHANY PETRA ;MANHATTAN SCIENT INC (US)) 13. Januar 2000 (2000-01-13) in der Anmeldung erwähnt Seite 5, Zeile 3 - Zeile 5; Ansprüche 1,6; Abbildung 5	2,3,8-10
A	AT 393 045 B (SCHUETZ PETER DIPL ING DR) 25. Juli 1991 (1991-07-25) Seite 5, Zeile 28 - Zeile 37; Anspruch 1; Abbildung 4	7
A	EP 0 499 935 A (ABB PATENT GMBH) 26. August 1992 (1992-08-26) 	
	·	

Formblatt PCT/ISA/210 (Fortsetzung von Blatt 2) (Juli 1992)

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Ir nales Aktenzeichen
PCT/EP 01/06175

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung		Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 5945232 A	31-08-1999	AU EP JP WO	3186299 A 1070361 A1 2002510851 T 9952164 A1	25-10-1999 24-01-2001 09-04-2002 14-10-1999
JP 08185875 A	16-07-1996	KEIN	E	
GB 2323700 A	30-09-1998	DE US CA GB	19713250 A1 6080503 A 2233440 A1 2348047 A ,B	15-10-1998 27-06-2000 29-09-1998 20-09-2000
DE 19823880 A	10-12-1998 -	DE FR GB SE	19823880 A1 2764122 A1 2326017 A 9801942 A	10-12-1998 04-12-1998 09-12-1998 04-12-1998
WO 0002279 A	13-01-2000	DE AU BR CN WO DE EP JP NO TR	19829142 A1 5616499 A 9911759 A 1307734 T 0002279 A2 19981229 D2 1095415 A2 2002520777 T 20006707 A 200003802 T2	05-01-2000 24-01-2000 03-04-2001 08-08-2001 13-01-2000 13-06-2001 02-05-2001 09-07-2002 29-12-2000 21-06-2001
AT 393045 B	25-07-1991	AT	190489 A	15-12-1990
EP 0499935 A	26-08-1992	DE EP	4104841 A1 0499935 A1	20-08-1992 26-08-1992

Formblatt PCT/ISA/210 (Anhang Patentfemilie)(Juli 1992)